

ZnSe 中の Ga 不純物中心に局在する励起子のコヒーレント光学応答の研究

著者	常盤 圭佑
雑誌名	東北大学電通談話会記録
巻	87
号	1
ページ	230-231
発行年	2018-08
URL	http://hdl.handle.net/10097/00123517

修士学位論文要約（平成30年3月）

ZnSe 中の Ga 不純物中心に局在する励起子のコヒーレント光学応答の研究

常盤 圭佑

指導教員：枝松 圭一， 研究指導教員：三森 康義

Study on Coherent Optical Response of Excitons
Localized to Ga Impurity Centers in ZnSe

Keisuke TOKIWA

Supervisor: Keiichi EDAMATSU, Research Advisor: Yasuyoshi MITSUMORI

We estimate the lifetime and the dephasing time of the excitons localized to the Ga impurity centers in ZnSe. We evaluate the exciton lifetime as ~ 500 ps and the dephasing time to be ~ 600 ps. In addition, we observe the four wave mixing signal at the negative time delay and the dependence of the four wave mixing response on the first pulse intensity. We numerically calculate the dependence of the four wave mixing response on the first pulse intensity using the Bloch equations taking into account the local field effect. The calculated results well reproduce the four wave mixing response in the weak excitation regime and the change in the signal profile at the positive time delay by the first pulse intensity. The good agreement with the experimental and calculated results indicates that we observe the local field effect in the excitons localized to the Ga impurity centers in ZnSe.

1. 背景・目的

半導体を光励起すると電子分極とともに光誘起電荷が誘起される。一般に光誘起電荷はバルク結晶中では結晶の並進対称性により打ち消し合ってしまう。しかし、光の波長より十分微小な局在電子分極では結晶の並進対称性が崩れ、光誘起電荷が露わに誘起されると期待される。誘起された光誘起電荷は局在電子分極内でクーロン相互作用するため、電子分極の共鳴周波数は励起光強度によって変調されると考えられる。この現象を局所電場効果(Local Field Effect: LFE)と呼ぶ。

LFE は現在のところ、量子ドットアンサンブルでのみ観測されており[1, 2]、励起強度や離調によって光学応答が変化すると理論的に予測されている[3]。このため、LFE の応用として光による光制御デバイスの新しい動作原理として期待されている。このようなデバイスを開発するにはレーザー光と電子分極の離調による新光学応答の制御が必要不可欠である。しかし、量子ドットアンサンブルでは2点問題がある。一つは量子ドット自身の作製が困難な点、二点目は広い不均一幅を持つため、離調の制御が不可能な点である。そのため、LFE を発現する材料として作製が容易でかつ結晶全体で不均一幅が小さい材料が求められている。その候補として我々が着目したのが半導体中の不純物中心に局在した励起子である。不純物準位は作製が容易で不均一幅が数 meV と狭いため、量子ドットよりも LFE 研究に適した材料となりうると考えられる。さらに、不純物準位は多くの既存の

材料に存在するため、LFE が観測されれば、既存材料に新光学応答を発現させることが可能となる。そのため、半導体中の不純物準位で LFE を観測することは基礎物理、材料物性の観点から非常に重要な研究だと考えられる。今回は不純物準位として ZnSe 薄膜中の Ga 不純物中心に着目した。しかし、現在までにこの準位では時間応答の測定が行われていない。

そこで本研究では発光寿命(T_1)測定・四光波混合(FWM)法による位相緩和時間(T_2)測定によって、未だ測定されていない ZnSe 薄膜中の Ga 不純物準位の時間応答を測定すると同時に LFE 由来のシグナルの観測を行う事を目的とした。

2. 試料・実験方法

本研究で用いた ZnSe は GaAs 基板の(100)面上で分子線エピタキシー法によって結晶成長させた厚さ $4.7 \mu\text{m}$ の薄膜である。本研究では Ga 不純物中心に局在しているライトホール励起子を測定した。

図1は発光寿命測定の概略図である。試料はクライオスタット中に固定して約 4K に冷却した。励起光源にピコ秒モードロック Ti:Sapphire レーザーを用い、非共鳴励起配置で測定を行った。試料からの発光は分光器を用いて不純物準位の発光のみ取り出し、時間相関モジュールにより発光寿命測定を行った。

図2はFWM測定の概略図である。試料はクライオスタット中に固定して約 4K に冷却して測定を行った。励起光源にピコ秒モードロック Ti:Sapphire レーザーを用い、パルス時間幅約 1 ps、中心波長は非線形光学素子を用いて不純物準位に共鳴するように設定し

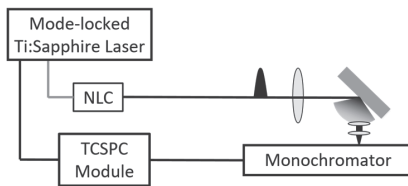


図1：発光寿命測定の概略図

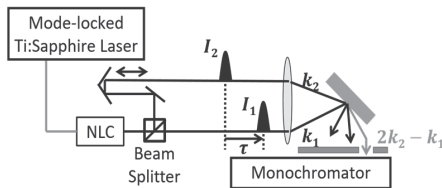


図2：FWM 測定 の概略図

た。光源から出射された光パルスはビームスプリッターによって分割し、遅延時間 τ を設けて試料に集光した。試料より発生した FWM シグナルは分光器を用いて不純物準位の周波数のみを取り出して測定した。

3. 実験結果

図3に発光寿命測定の結果を示す。測定結果より、 T_1 が約 500 ps だと判明した。図4にFWM測定の結果を示す。これより、 T_2 が約 600 ps だと判明した。また、 $\tau < 0$ においても減衰時間が 200 ps のシグナルを観測した。これは新光学応答だと考えられる。

図5にFWM測定の結果の第1パルス強度(I_1)依存性の測定結果を示す。第2パルスの強度は $I_2 = 2.62 \mu\text{J}/\text{cm}^2/\text{pulse}$ に固定した。 $\tau < 0$ においては大きな変化はなかったが、 $\tau > 0$ において I_1 が増加すると減衰形状が膨らんでいくような傾向が得られた。

4. 考察

LFE を考慮した光学ブロッホ方程式[3]を用いて解析し、実験結果を再現するか試みた。結果を図6に示す。測定結果と比較すると、 $\tau < 0$ におけるシグナルの出現、 $\tau > 0$ における励起強度依存性を非常によく再現している。このことより、本研究で ZnSe 中の Ga 不純物中心において LFE の観測に成功したと考えられる。しかし、 $\tau < 0$ における励起強度依存性の再現性はあまりよくない。これは、 $\tau < 0$ におけるシグナルは不均一幅に影響されやすいためである。数値計算を測定結果に近づけるためには試料の不均一性を考慮する必要があると考えられる。

5. まとめ

本研究では ZnSe の Ga 不純物中心において発光寿命測定、FWM 測定を行った。その結果、 T_1 が約 500 ps、 T_2 が約 600 ps だと判明した。さらに、FWM

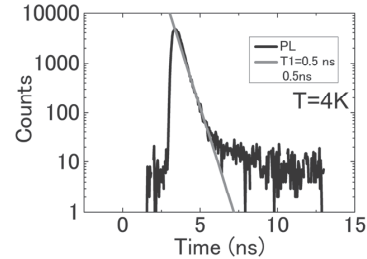


図3：不純物準位における発光寿命

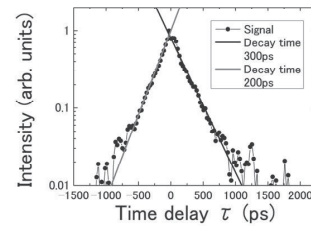
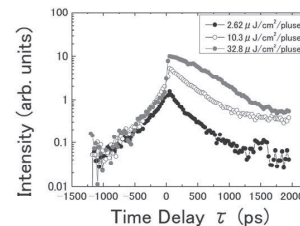
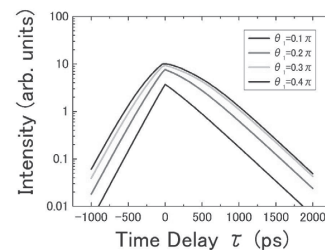


図4：不純物準位における FWM

図5：不純物準位における FWM の I_1 依存性 ($I_2 = 2.62 \mu\text{J}/\text{cm}^2/\text{pulse}$ に固定)図6：FWM の数値計算 ($\theta_2 = 0.1\pi$)

測定においては、 $\tau < 0$ におけるシグナルの出現、シグナルの I_1 依存性が確認された。この傾向は LFE を考慮した数値計算によってほぼ再現できた。よって本研究で ZnSe の Ga 不純物中心において LFE の観測に成功したと考えられる。

参考文献

- [1] Y. Mitsumori, *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 155301 (2017).
- [2] K. Asakura, *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 241301 (2013).
- [3] G. Y. Slepyan, *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 045320 (2004).